

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 07282814 A

(43) Date of publication of application: 27 . 10 . 95

(51) Int. Cl

H01M 4/88
C25B 11/04
C25B 11/12
C25D 17/10
H01M 4/04
H01M 4/86

(21) Application number: 06087519

(22) Date of filing: 01 . 04 . 94

(71) Applicant: TANAKA KIKINZOKU KOGYO
KK FURUYA CHOICHI

(72) Inventor: FURUYA CHOICHI
KAWASHIMA SHOJI

**(54) MANUFACTURE OF GAS DIFFUSION
ELECTRODE**

(57) Abstract

PURPOSE: To easily provide a larged gas diffusion electrode by setting a pressing pressure and a pressing time to specific values, respectively, at the time of heating and pressurizing.

CONSTITUTION: A cake for a reaction layer is made of a mixture of hydrophilic carbon black, water repellent carbon black, a fluororesin, and water. A cake for a gas

diffusion layer is made of a mixture of water repellent carbon black, a fluororesin, and water. Subsequently, a solvent and an infusion are made to penetrate in both cakes, followed by rolling and heating, whereby the water and the solvent are removed, thus producing sheets. Thereafter, both sheets are heated, pressurized and bonded to each other, wherein a pressing pressure is set to 25-100kg/cm² and a pressing time is set to 30sec. to 40 minutes at the time of heating and pressing.

COPYRIGHT: (C)1995,JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平7-282814

(43)公開日 平成7年(1995)10月27日

(51) Int.Cl.*	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
H 01 M 4/88		K		
C 25 B 11/04		A		
	11/12			
C 25 D 17/10	101	A		
H 01 M 4/04		A		

審査請求 未請求 請求項の数3 FD (全4頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願平6-87519	(71)出願人 000217228 田中貴金属工業株式会社 東京都中央区日本橋茅場町2丁目6番6号
(22)出願日	平成6年(1994)4月1日	(71)出願人 000165952 古屋 長一 山梨県甲府市中村町2番14号

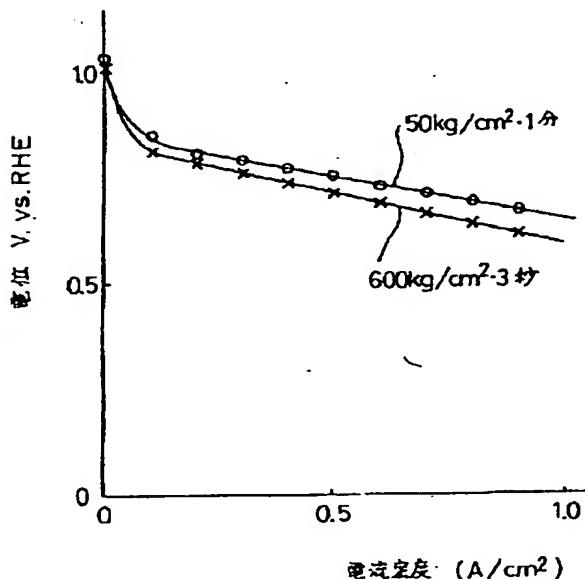
(72)発明者 古屋 長一
山梨県甲府市中村町2番14号
(72)発明者 川島 昭二
千葉県市川市高谷2015番地7 田中貴金属
工業株式会社市川工場内

(54)【発明の名称】 ガス拡散電極の製造方法

(57)【要約】

【目的】 性能の向上したガス拡散電極が得られ、さらに大型のガス拡散電極が得られる製造方法を提供する。

【構成】 親水性カーボンブラック、撥水性カーボンブラック及びフッ素樹脂より成る反応層用シート並びに撥水性カーボンブラック及びフッ素樹脂より成るガス拡散層用シートをそれぞれ圧延した後、25kg/cm²乃至100kg/cm²の圧にて30秒乃至40分間加熱加圧して接合する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 親水性と撥水性のカーボンブラックとフッ素樹脂と水との混合物より反応層用ケーキを作製し、一方撥水性カーボンブラックとフッ素樹脂と水との混合物よりガス拡散層用ケーキを作製し、次に両ケーキに溶剤を浸透させ夫々圧延し、次いで夫々加熱して水及び溶剤を除去して反応層用及びガス拡散層用シートを作製した後、両シートを加熱加圧接合するガス拡散電極の製造方法において、加熱加圧時のプレス圧を $25\text{kg}/\text{cm}^2$ 乃至 $100\text{kg}/\text{cm}^2$ とし、プレス時間を30秒乃至40分間とすることを特徴とする、ガス拡散電極の製造方法。

【請求項2】 上記加熱加圧時のプレス圧を $45\text{kg}/\text{cm}^2$ 乃至 $55\text{kg}/\text{cm}^2$ とすることを特徴とする請求項1記載のガス拡散電極の製造方法。

【請求項3】 上記加熱加圧時のプレス時間を30秒乃至90秒とすることを特徴とする請求項1又は2記載のガス拡散電極の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は燃料電池、二次電池、電気化学的リアクター、めっき用陽極、食塩電解用陽極等に用いるガス拡散電極の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、ガス拡散電極の製造方法として、親水性カーボンブラック（表面に $-\text{COOH}$ 等の水と親和性のある活性基を持つもの）に白金触媒を担持したものと撥水性カーボンブラック（グラファイト化が進行しており、水と親和性のある活性基を持たないもの）とポリテトラフルオロエチレン（PTFE）等のフッ素樹脂を混合してプレスを行い反応層を作成し、一方撥水性カーボンブラックとフッ素樹脂を混合してプレスすることによりガス拡散層を作成し、それぞれ得られた反応層とガス拡散層を接合することによりガス拡散層が得られていた。ところが、この方法で作成したものはフッ素樹脂が溶融し結着作用はあるもののフッ素樹脂の纖維化がおこらず、強度の低いものであった。

【0003】 そのため本発明者らは、親水性と撥水性のカーボンブラックとフッ素樹脂より作製したケーキ、及び撥水性のカーボンブラックとフッ素樹脂より作製したケーキのそれぞれに溶剤を浸透させ、ロール圧延することにより、フッ素樹脂を纖維化し、強度の高い反応層及びガス拡散層を作成し、しかる後両シートを加熱加圧接合することにより、ガス拡散電極を製造する方法を発明した。（特開昭62-156286）

【0004】 ところがこの製造方法で製造する場合、フッ素樹脂の溶着を完全にするため従来は加圧時のプレスを $600\text{kg}/\text{cm}^2$ 程度の圧力で3秒間ほど行なっていたが、大きなガス拡散電極を作製しようとする場合プレスの能力として膨大なものが必要となるという問題があった。さらに従来得られているガス拡散電極はその特性がまだ

十分に満足ゆくものとはいせず、さらに性能の向上したもののが望まれていた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は上記問題を解決し、さらに性能の良いガス拡散電極が得られ、また大型のガス拡散電極が容易に得られる製造方法を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】 本発明は親水性と撥水性のカーボンブラックとフッ素樹脂と水との混合物より反応層用ケーキを作製し、一方撥水性カーボンブラックとフッ素樹脂と水との混合物よりガス拡散層用ケーキを作製し、次に両ケーキに溶剤を浸透させ夫々圧延し、次いで夫々加熱して水及び溶剤を除去してシートを作製した後、両シートを加熱加圧接合するガス拡散電極の製造方法において、加熱加圧時のプレス圧を $25\text{kg}/\text{cm}^2$ 乃至 $100\text{kg}/\text{cm}^2$ とし、プレス時間を30秒乃至40分間とすることである。さらに他の本発明は、加熱加圧時のプレス圧を $45\text{kg}/\text{cm}^2$ 乃至 $55\text{kg}/\text{cm}^2$ とし、またプレス時間を30秒乃至90秒とするものである。

【0007】

【作用】 本発明は従来 $600\text{kg}/\text{cm}^2$ 程度の圧力で行なわれているものを、圧力を下げてもプレス時間を長くすることにより溶融したフッ素樹脂の浸透を十分に行なわせるようにしたものである。プレス圧を $25\text{kg}/\text{cm}^2$ 乃至 $100\text{kg}/\text{cm}^2$ の範囲としたのは、 $25\text{kg}/\text{cm}^2$ 未満では溶融したフッ素樹脂の浸透が十分に行なわらず、また $100\text{kg}/\text{cm}^2$ を越えると大型のガス拡散電極を作製した場合のプレス圧減少効果があまり期待できなくなるためである。なお、フッ素樹脂の浸透効果、プレス圧の減少効果をさらに期待する場合は、 $45\text{kg}/\text{cm}^2$ 乃至 $55\text{kg}/\text{cm}^2$ の範囲が好ましいものである。

【0008】 また、プレス時間を30秒乃至40分としたのは、30秒未満ではフッ素樹脂の浸透が十分に行なわれず、また40分を越えるとガス拡散電極を製造するための時間が長くなりすぎるばかりでなく、比抵抗、引張強度等の特性が低下してしまうためである。製造時間の短縮化を考えた場合、30秒乃至90秒がより好ましい範囲である。

【0009】

【実施例1】 平均粒径 420\AA の親水性カーボンブラックと平均粒径 $0.3\mu\text{m}$ のPTFE粉末を13:7の割合で水に加え 50°C にてコロイドミルで搅拌混合した後、混合液を冷凍した後解凍し、親水性カーボンブラックとPTFE粉末の混合液を作製した。一方平均粒径 420\AA の撥水性カーボンブラックと平均粒径 $0.3\mu\text{m}$ のPTFE粉末を6:4の割合で水に加え、 50°C にてコロイドミルで混合搅拌した後冷凍し、その後解凍し撥水性カーボンブラックとPTFE粉末の混合液を作成した。上記得られた親水性カーボンブラックとPTFE粉末の混合液及び撥

水性カーボンブラックとPTE粉末の混合液を7:6の割合で混合した後、通過器で通過し通過板上に反応層用ケーキを作製した。他方上記と同じ親水性カーボンブラックとPTE粉末を7:3の割合で水に加え、50℃にてコロイドミルで混合攪拌した後冷凍し、解凍して得た液を通過器で通過することにより、通過板上にガス拡散層用ケーキを作製した。

【0010】次にここで作製した2種類のケーキにナフサを浸透させ、夫々ロール圧延して厚さ0.5mmとなし、次いで夫々280℃で加熱して乾燥し且つナフサを除去して反応層用シート及びガス拡散層用シートを作製した。ここで得られた両シートを夫々100mm角に切断した後、380℃で50kg/cm²の圧で0.2秒から60分の間で保持時間を変化させて加熱加圧し、両シートを接合した。その後、親水性カーボンブラックを含有するシートの表面に塩化白金酸の溶液を白金が0.6mg/cm²となるように塗布含浸させた後、空気中200℃で加熱分解し、H₂中200℃で還元して白金を親水性カーボンブラックに担持させることにより、ガス拡散電極を作製した。

【0011】

【従来例】実施例1と同様の方法で反応層用シート及びガス拡散用シートを作製した後、夫々100mm角に切断し、380℃で600kg/cm²の圧で3秒間加熱加圧し、両シートを接合した。その後実施例1と同様の方法で白金を担持させガス拡散電極を作製した。

【0012】

【実施例2】実施例1及び従来例にて作製したガス拡散電極の引張強度及び比抵抗を下記条件にて測定した。

(引張強度測定条件)

試料幅 5mm

引張速度 0.5mm/sec

(比抵抗測定条件)

四端子法にて測定

試料片 幅1cm、長さ5cm、厚さ0.5mmの短冊状のものを使用

その結果実施例1で得られたガス拡散電極の引張強度及び比抵抗を夫々図1及び図2に示す。なお、従来例で得られたものの引張強度は16.7kg/cm²であり、比抵抗は、

0.21Ωcmであった。このように実施例1で得られたガス拡散電極は従来例で得られたものより引張強度は高くまた比抵抗は低くなっていることがわかる。

【0013】

【実施例3】実施例1で得られたガス拡散電極のうち加圧を50kg/cm²で1分間行なったもの及び従来例で得られたものを用いて燃料電池(25%硫酸水溶液を電解質とし、酸化性ガス及び還元性ガスとしてそれぞれO₂及びH₂を1atmで供給し、60℃で作動させたもの)を作製し、そのときの電流密度と電池出口の関係を測定した。その結果を図3に示す。このように本発明で得られたガス拡散電極も従来例で得られたガス拡散電極もほぼ同等の性能であった。

【0014】

【実施例4】実施例3で用いたのと同じガス拡散電極を用い、32%水酸化ナトリウム水溶液を60℃で電解したときの、電流密度と電位の関係を測定した。その結果を図4に示すが、このようにソーダ電解においても本発明で得られたガス拡散電極は従来例で得られたガス拡散電極とほぼ同等の性能であった。

【0015】

【発明の効果】以上の通り、本発明のガス拡散電極の製造方法によれば、従来品と同等あるいは引張強度等においては性能の優れたガス拡散電極を、低圧のプレスで作製することができ、大型のガス拡散電極の作製も容易となるという多大な効果を奏するものである。

【図面の簡単な説明】

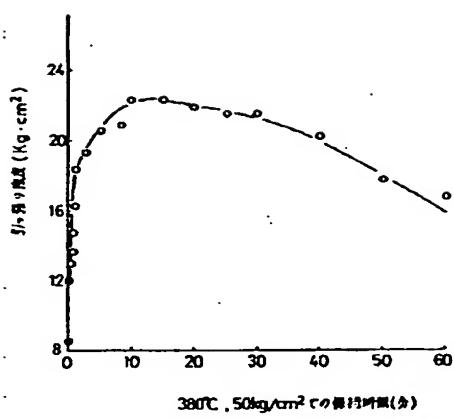
【図1】実施例1で得られたガス拡散電極の、製造時の加圧時間と引張強度の関係を示した図である。

【図2】実施例1で得られたガス拡散電極の製造時の加圧時間と比抵抗の関係を示した図である。

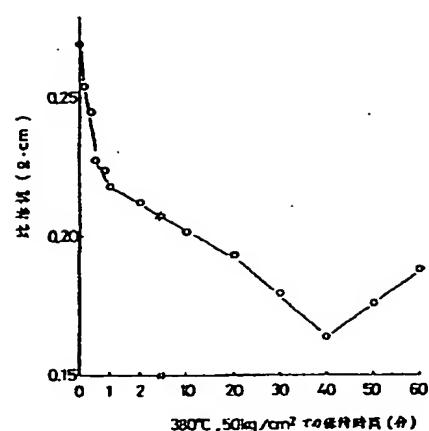
【図3】本発明で得られたガス拡散電極と従来例のガス拡散電極で燃料電池を組み立てたときの電流密度と電池出力の関係を示した図である。

【図4】本発明で得られたガス拡散電極と、従来例のガス拡散電極を用いてソーダ電解を行なったときの、電流密度と電位の関係を示した図である。

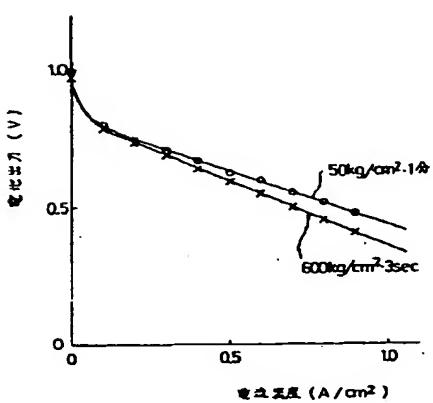
【図1】



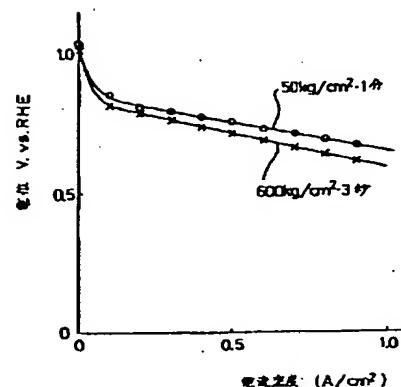
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6

H 01 M 4/86

識別記号 庁内整理番号

B

F I

技術表示箇所